#7.i+, Atty. Dkt.: 10517/80, 1-230

### IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

**Applicants** 

Shoji ABO et al.

Serial No.

Not Yet Assigned

Filed

HEREWITH

For

MANUFACTURING APPARATUS AND MANUFACTURING

METHOD OF SOLID POLYMER FILM WITH CATALYST

**DEPOSITED THEREON** 

Group Art Unit:

Not Yet Assigned

Examiner

Not Yet Assigned

Assistant Commissioner of Patents Washington, D.C. 20231

#### **CLAIM TO CONVENTION PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119**

SIR:

The Convention Priority Date of Japanese Patent Application No. 2000-003534 was filed on January 12, 2000 and was claimed in the Declaration/ Power of Attorney filed with the application on even date. To complete the claim to the Convention Priority Date of said Japanese Patent Application, a certified copy thereof is submitted herewith.

Respectfully submitted,

Dated January 17,700/

Mark H. Neblett

Registration No. 42,081

KENYON & KENYON 1500 K Street, N.W., Suite 700 Washington, DC 20005

Tel: Fax: (202) 220-4200 (202) 220-4201

## 日本国特許庁

# PATENT OFFICE JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

2000年 1月12日

出 願 番 号 Application Number:

特願2000-003534

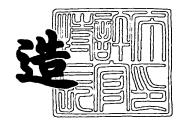
出 願 人 Applicant (s):

トヨタ自動車株式会社

2000年 8月25日

特許庁長官 Commissioner, Patent Office





【書類名】

特許願

【整理番号】

TY1-4432

【提出日】

平成12年 1月12日

【あて先】

特許庁長官殿

【国際特許分類】

H01M 4/88

【発明の名称】

接合体製造装置および接合体製造方法

【請求項の数】

8

【発明者】

【住所又は居所】

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社

内

【氏名】

田中 克久

【特許出願人】

【識別番号】

000003207

【氏名又は名称】 トヨタ自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】

100075258

【弁理士】

【氏名又は名称】

吉田 研二

【電話番号】

0422-21-2340

【選任した代理人】

【識別番号】

100081503

【弁理士】

【氏名又は名称】

金山 敏彦

【電話番号】

0422-21-2340

【選任した代理人】

【識別番号】

100096976

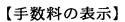
【弁理士】

【氏名又は名称】

石田 純

【電話番号】

0422-21-2340



【予納台帳番号】 008268

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 接合体製造装置および接合体製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 触媒と固体高分子膜との接合体を製造する接合体製造装置であって、

前記固体高分子膜を予備加熱する予備加熱手段と、

前記触媒を転写基材の一面に担持させてなる触媒担持基材と前記予備加熱手段 により予備加熱された固体高分子膜とを前記触媒と前記固体高分子膜とが接触す る状態で加熱および加圧して一体化した接合部材とする加熱加圧手段と、

該一体化した接合部材から前記転写基材を剥離する剥離手段と を備える接合体製造装置。

【請求項2】 前記加熱加圧手段により一体化した接合部材とされる前に前 記触媒担持基材を冷却する触媒担持基材冷却手段を備える請求項1記載の接合体 製造装置。

【請求項3】 前記剥離手段は、前記一体化した接合部材に対して略180 度の角度をもって前記転写基材を剥離する手段である請求項1または2記載の接 合体製造装置。

【請求項4】 前記剥離手段は、前記一体化した接合部材を冷却する接合部 材冷却手段を備える請求項1ないし3いずれか記載の接合体製造装置。

【請求項5】 前記加熱加圧手段は、前記予備加熱手段を兼ねる手段である 請求項1ないし4いずれか記載の接合体製造装置。

【請求項6】 請求項1ないし4いずれか記載の接合体製造装置であって、前記加熱加圧手段は、前記固体高分子膜が前記触媒担持基材で挟持された状態で加熱および加圧する手段であり、

前記剥離手段は、前記一体化した接合部材の両面から前記転写基材を剥離する 手段である

接合体製造装置。

【請求項7】 触媒と固体高分子膜との接合体を製造する接合体製造方法であって、

前記固体高分子膜を予備加熱する予備加熱工程と、

前記触媒を転写基材の一面に担持させてなる触媒担持基材と前記予備加熱された固体高分子膜とを該触媒と該固体高分子膜とが接触する状態で加熱および加圧 して一体化した接合部材とする加熱加圧工程と、

該一体化した接合部材から前記転写基材を剥離する剥離工程と を備える接合体製造方法。

【請求項8】 前記加熱加圧工程の前に前記触媒担持基材を冷却する触媒担 持基材冷却工程を備える請求項7記載の接合体製造方法。

#### 【発明の詳細な説明】

[0001]

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、接合体製造装置および接合体製造方法に関し、詳しくは、触媒と固体高分子膜との接合体を製造する接合体製造装置および接合体製造方法に関する

[0002]

#### 【従来の技術】

従来、この種の接合体製造装置としては、固体高分子膜と触媒担持フィルムをホットプレスにより接合した後にフィルムを剥離するものが提案されている(例えば、特開平10-64574号公報など)。この装置では、固体高分子膜を触媒担持フィルムで挟持した状態で直接ホットプレスして接合し、その後、略90度の角度をもって両面からフィルムを剥離している。なお、こうして製造された固体高分子膜と触媒との接合体は、固体高分子型燃料電池に用いられる電解質としての固体高分子膜とその両側の触媒電極としての触媒層との接合体として用いられる。

[0003]

#### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、こうした接合体製造装置では、固体高分子膜への触媒の転写が 良好に行なわれない場合がある。ホットプレスにより固体高分子膜と触媒とは接 合するが、その結着強度が小さいためにフィルムを剥離する際に部分的に触媒が



固体高分子膜から剥がれてしまうのである。

[0004]

本発明の接合体製造装置および接合体製造方法は、固体高分子膜に触媒を良好に転写して、良好な状態の接合体を製造することを目的とする。

[0005]

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】

本発明の接合体製造装置および接合体製造方法は、上述の目的を達成するために以下の手段を採った。

[0006]

本発明の接合体製造装置は、

触媒と固体高分子膜との接合体を製造する接合体製造装置であって、

前記固体高分子膜を予備加熱する予備加熱手段と、

前記触媒を転写基材の一面に担持させてなる触媒担持基材と前記予備加熱手段により予備加熱された固体高分子膜とを前記触媒と前記固体高分子膜とが接触する状態で加熱および加圧して一体化した接合部材とする加熱加圧手段と、

該一体化した接合部材から前記転写基材を剥離する剥離手段と を備えることを要旨とする。

[0007]

この本発明の接合体製造装置では、加熱加圧手段が、触媒を転写基材の一面に 担持させてなる触媒担持基材と予備加熱手段により予備加熱された固体高分子膜 とを触媒と固体高分子膜とが接触する状態で加熱および加圧して一体化した接合 部材とし、剥離手段が、この一体化した接合部材から転写基材を剥離する。こう した本発明の接合体製造装置によれば、予備加熱手段により固体高分子膜を予備 加熱することにより、固体高分子膜と触媒との結着強度を高めて転写基材を剥離 する際に固体高分子膜から触媒が剥離するのを防止することができる。この結果 、触媒の剥離のない良好な状態の接合体を製造することができる。

[0008]

こうした本発明の接合体製造装置において、前記加熱加圧手段により一体化し た接合部材とされる前に前記触媒担持基材を冷却する触媒担持基材冷却手段を備



えるものとすることもできる。こうすれば、転写基材の剥離を良好に行なうことができる結果、固体高分子膜への触媒の転写をより良好に行なうことができる。

[0009]

また、本発明の接合体製造装置において、前記剥離手段は、前記一体化した接合部材に対して略180度の角度をもって前記転写基材を剥離する手段であるものとすることもできる。こうすれば、転写基材の剥離の際に触媒が固体高分子膜から剥離するのを抑制することができる。

[0010]

さらに、本発明の接合体製造装置において、前記剥離手段は、前記一体化した接合部材を冷却する接合部材冷却手段を備えるものとすることもできる。こうすれば、転写基材の剥離をさらに良好に行なうことができる。

[0011]

あるいは、本発明の接合体製造装置において、前記加熱加圧手段は、前記予備 加熱手段を兼ねる手段であるものとすることもできる。こうすれば、装置を部品 数の少ないシンプルなものにすることができる。

[0012]

また、本発明の接合体製造装置において、前記加熱加圧手段は、前記固体高分子膜が前記触媒担持基材で挟持された状態で加熱および加圧する手段であり、前記剥離手段は、前記一体化した接合部材の両面から前記転写基材を剥離する手段であるものとすることもできる。こうすれば、両面に触媒が接合された接合体を製造することができる。

[0013]

本発明の接合体製造方法は、

触媒と固体高分子膜との接合体を製造する接合体製造方法であって、

前記固体高分子膜を予備加熱する予備加熱工程と、

前記触媒を転写基材の一面に担持させてなる触媒担持基材と前記予備加熱された固体高分子膜とを該触媒と該固体高分子膜とが接触する状態で加熱および加圧 して一体化した接合部材とする加熱加圧工程と、

該一体化した接合部材から前記転写基材を剥離する剥離工程と

を備えることを要旨とする。

[0014]

この本発明の接合体製造方法では、固体高分子膜を予備加熱することにより、 固体高分子膜と触媒との結着強度を高めて転写基材を剥離する際に固体高分子膜 から触媒が剥離するのを防止することができる。この結果、良好な状態の接合体 を製造することができる。

[0015]

こうした本発明の接合体製造方法において、前記加熱加圧工程の前に前記触媒 担持基材を冷却する触媒担持基材冷却工程を備えるものとすることもできる。こ うすれば、転写基材の剥離を良好に行なうことができる結果、良好な状態の接合 体を製造することができる。

[0016]

【発明の実施の形態】

次に、本発明の実施の形態を実施例を用いて説明する。図1は、本発明の一実施例である接合体製造装置20の構成の概略を示す構成図である。実施例の接合体製造装置20は、固体高分子膜10を巻き出す巻き出しローラ22と、巻き出された固体高分子膜10の張力を除去する一対の張力除去ローラ24と、触媒を一面に担持する触媒担持フィルム12を巻き出す巻き出しローラ26と、巻き出された触媒担持フィルム12を所定の温度に保冷する保冷ローラ28と、固体高分子膜10を予備加熱すると共に固体高分子膜10と触媒担持フィルム12とを加熱および加圧して接合部材14とする一対の加熱加圧ローラ30と、接合部材14を冷却する冷却ローラ34と、この冷却ローラ34と整合して回転すると共に接合部材14からフィルム16を剥離する剥離ローラ36と、フィルム16の剥離角度を設定する剥離角度設定ローラ38と、フィルム16を巻き取る巻き取りローラ40と、フィルム16が剥離されてなる接合体18を巻き取る巻き取りローラ40と、フィルム16が剥離されてなる接合体18を巻き取る巻き取りローラ42とを備える。

[0017]

固体高分子膜10は、湿潤状態で良好なプロトン導電性を示す高分子材料、例 えばパーフルオロスルホネートイオノマー(デュポン製の商品名「ナフィオン」 )により厚さが10~300μm程度に形成された薄膜である。触媒担持フィルム12は、白金または白金と他の金属との合金からなる触媒を担持する粉末カーボンが樹脂により形成されたフィルム16の一面に塗布された薄膜である。

[0018]

張力除去ローラ24は、加熱加圧ローラ30の回転による固体高分子膜10の 搬送速度と同期するよう回転し、加熱加圧ローラ30で加熱加圧される際に固体 高分子膜10に張力が作用しないようにする。こうすることにより、固体高分子 膜10の加熱加圧の際の変形を抑制することができる。

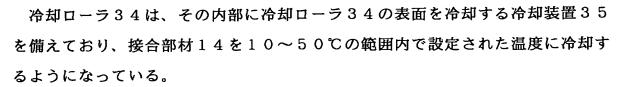
[0019]

保冷ローラ28は、その内部に保冷ローラ28の表面を冷却する冷却装置29 を備えており、触媒担持フィルム12が10~40℃の範囲内で設定された温度 に保冷されるようになっている。

[0020]

加熱加圧ローラ30は、その内部に加熱加圧ローラ30の表面を加熱するヒータ31が設けられていると共に一対の加熱加圧ローラ30間に圧力を作用させる加圧装置32が取り付けられている。ヒータ31による加熱は、加圧される固体高分子膜10のガラス転移温度近傍の80~140℃の範囲内で設定された温度となるように調節されている。また、加圧装置32により加熱加圧ローラ30間に作用させる圧力は、10~100MPaの範囲内で設定された圧力となるよう調節されている。図1には、一対の加熱加圧ローラ30のうち下方のローラにヒータ31を取り付けてあるが、上方のローラにもヒータが取り付けられており、加熱できるようになっている。ただし上方のローラに取り付けられたヒータによる加熱は、上方のローラの表面温度が下方のローラの表面温度以下となるよう調節されている。このように、保冷ローラ28により触媒担持フィルム12を保冷すると共に加熱加圧ローラ30により触媒担持フィルム12側の温度を低くして加熱および加圧することにより、フィルム16と触媒との結着強度が増加するのを抑制し、接合部材14からのフィルム16の剥離性を向上させることができる

[0021]



[0022]

剥離ローラ36は、フィルム16の剥離性が向上するようその直径が30mm以下となるよう形成されている。また、剥離角度設定ローラ38は、剥離ローラ36により剥離されるフィルム16と接合体18との角度が略180度となるようその位置が調節されている。

[0023]

次に、こうして構成された実施例の接合体製造装置20により接合体18が製造される様子について説明する。図2は、接合体18の製造の様子を例示する製造工程図である。接合体18の製造は、まず、巻き出しローラ22から巻き出され張力除去ローラ24により張力除去された固体高分子膜10を加熱加圧ローラ30により予備加熱すると共に巻き出しローラ26から巻き出された触媒担持フィルム12を保冷ローラ28により保冷する工程から始まる(工程S10)。固体高分子膜10の予備加熱は、加熱加圧ローラ30の一方のローラ(図1中下方のローラ)に固体高分子膜10を所定の角度をもって搬送することによって行なう。即ち、一対の加熱加圧ローラ30で加圧される前に一方のローラに固体高分子膜10を接触させることにより予備加熱するのである。固体高分子膜10を予備加熱するのは、予備加熱によって固体高分子膜10を軟化させた状態で加熱および加圧のホットプレスすることにより、固体高分子膜10と触媒との結着強度を高めるためである。保冷ローラ28により触媒担持フィルム12を保冷することによりフィルム16の剥離性を向上させることについては前述した。

[0024]

次に、予備加熱された固体高分子膜10と保冷された触媒担持フィルム12とを加熱加圧ローラ30で加熱および加圧のホットプレスして接合部材14とする(工程S12)。ホットプレスの条件は、80~140℃の範囲内で設定された温度で10~100MPaの範囲内で設定された圧力である。

[0025]

そして、冷却ローラ34により接合部材14を冷却すると共に(工程S14)、剥離ローラ36により接合部材14からフィルム16を剥離して(工程S16)、接合体18を完成する。なお完成した接合体18は巻き取りローラ42に巻き取られ、剥離したフィルム16は巻き取りローラ40に巻き取られる。

[0026]

以上説明した実施例の接合体製造装置20によれば、固体高分子膜10をホットプレスする前に予備加熱をすることにより、固体高分子膜10と触媒との結着強度を高め、接合部材14からフィルム16を剥離する際に固体高分子膜10から触媒が剥離するのを防止することができる。しかも、触媒担持フィルム12を保冷ローラ28により保冷したり、一対の加熱加圧ローラ30のうち触媒担持フィルム12側のローラの温度を低くすることにより、ホットプレスによるフィルム16と触媒との結着強度が増加するのを抑制し、接合部材14からのフィルム16の剥離性を向上させることができる。また、剥離ローラ36を30mm以下の直径とすると共にフィルム16と接合体18とを略180度の角度を持つようにしたので、フィルム16の剥離性をさらに向上させることができる。これらの結果、良好な状態の接合体18を製造することができる。

[0027]

実施例の接合体製造装置20では、保冷ローラ28により触媒担持フィルム12を保冷するものとしたが、加熱加圧ローラ30によりホットプレスされる直前まで触媒担持フィルム12を室温程度に保つことができる装置とすれば、保冷ローラ28により保冷しないものとしてもよい。また、ホットプレス直前まで接合部材14を室温程度に保つことができないものであっても、保冷ローラ28により保冷しないものとしても差し支えない。

[0028]

実施例の接合体製造装置20では、一対の加熱加圧ローラ30の触媒担持フィルム12側のローラの温度を固体高分子膜10側の温度以下となるようにしたが、このようにするのが望ましいだけで、同じ温度としたり、僅かだが触媒担持フィルム12側のローラの温度の方が高いものとしてもかまわない。

[0029]



実施例の接合体製造装置20では、冷却ローラ34により接合部材14を冷却するものとしたが、加熱加圧ローラ30と冷却ローラ34との間で接合部材14 を冷却するものとしてもよいし、その間隔が十分にある場合は特別な冷却装置を 設ける必要もない。また、冷却しないものとしても差し支えない。

[0030]

実施例の接合体製造装置20では、剥離ローラ36を直径30mm以下としたが、触媒とフィルム16との結着強度と触媒と固体高分子膜10との結着強度との大小によっては、直径30mmより大きなものを用いるものとしてもよい。

[0031]

実施例の接合体製造装置20では、剥離ローラ36により剥離されるフィルム 16と接合体18とが略180度の角度を持つよう調節したが、180度以外の 角度となるようにしても差し支えない。

[0032]

実施例の接合体製造装置20では、固体高分子膜10を所定の角度をもって加熱加圧ローラ30に搬送し、ホットプレス前に固体高分子膜10と加熱加圧ローラ30とを接触させることにより固体高分子膜10を予備加熱するものとしたが、固体高分子膜10を予備加熱する装置を設けるものとしてもよい。

[0033]

実施例の接合体製造装置20では、固体高分子膜10の一方の面に触媒を接合してなる接合体18を製造するものとしたが、固体高分子膜10の両面に触媒を接合してなる接合体18Bを製造するものとしてもよい。この場合の変形例の接合体製造装置20Bは、図示するように、巻き出しローラ22から巻き出され張力除去ローラ24により張力が除去され予備加熱ヒータ25により予備加熱された固体高分子膜10が二つの巻き出しローラ26A,26Bから巻き出され二つの保冷ローラ28A,28Bにより保冷された2枚の触媒担持フィルム12A,12Bにより挟持された状態で加熱加圧ローラ30Bによりホットプレスされる。ホットプレスにより接合された接合部材14Bは、二つの剥離ローラ36A,36Bによりフィルム16A,16Bが剥離されて、固体高分子膜10の両面に触媒が接合された接合体18Bと

される。なお、接合体18Bは巻き取りローラ42Bに巻き取られ、2枚のフィルム16A,16Bは、それぞれ巻き取りローラ40A,40Bに巻き取られる。以上説明した変形例の接合体製造装置20Bによれば、固体高分子膜10の両面に触媒が良好な状態で接合された接合体18Bを製造することができる。

#### [0034]

実施例の接合体製造装置 2 0 や変形例の接合体製造装置 2 0 Bでは、固体高分子膜 1 0 としてパーフルオロスルホネートイオノマーにより厚さが 1 0 ~ 3 0 0 μ m程度に形成された薄膜を用い、触媒担持フィルム 1 2 として白金または白金と他の金属との合金からなる触媒を担持する粉末カーボンがフィルム 1 6 に塗布された薄膜を用いたが、固体高分子膜 1 0 は湿潤状態で良好なプロトン導電性を示す高分子材料であれば如何なるものでもよく、触媒担持フィルム 1 2 は他の触媒を塗布したものであってもよい。また、加熱加圧ローラ 3 0 の表面温度や圧力は固体高分子膜 1 0 や触媒担持フィルム 1 2 の材質によって定まるものであるから、上述の 8 0 ~ 1 4 0 ℃の範囲内で設定された温度や 1 0 ~ 1 0 0 M P a の範囲内で設定された圧力に限られず、固体高分子膜 1 0 や触媒担持フィルム 1 2 の材質に適応する温度と圧力とを用いればよい。

#### [0035]

実施例の接合体製造装置20や変形例の接合体製造装置20Bでは、触媒担持フィルム12に塗布された触媒のすべてを固体高分子膜10に接合するものとしたが、触媒を所定の形状として固体高分子膜10に接合するものとしてもよい。この場合、図4に例示する変形例の加熱加圧ローラ30Cに例示するように、ロールの表面に凸形状の転写部30aを彫刻すればよい。こうすれば、固体高分子膜10と触媒担持フィルム12に対する加熱および加圧は、転写部30aの部分だけに作用するから、フィルム16を剥離する際に転写部30a以外の部分は、フィルム16と共に剥離し、固体高分子膜10には転写部30aの形状の触媒が接合されることになる。

#### [0036]

実施例の接合体製造装置20や変形例の接合体製造装置20Bでは、一対の加熱加圧ローラ30によりホットプレスするものとしたが、通常のプレス装置のよ



うに上下の二つ部材によりバッチ的にホットプレスするものとしても差し支えない。

#### [0037]

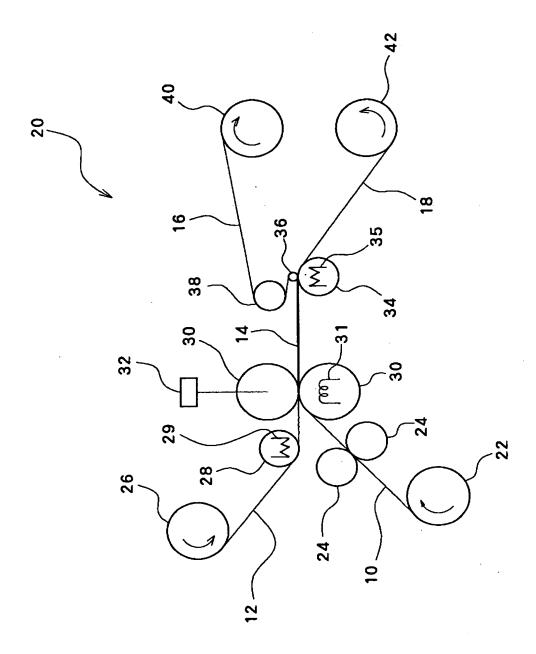
以上、本発明の実施の形態について実施例を用いて説明したが、本発明はこう した実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内に おいて、種々なる形態で実施し得ることは勿論である。

#### 【図面の簡単な説明】

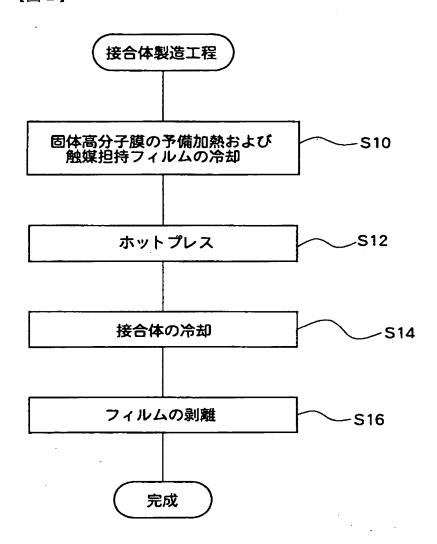
- 【図1】 本発明の一実施例である接合体製造装置20の構成の概略を示す 構成図である。
  - 【図2】 接合体18の製造の様子を例示する製造工程図である。
  - 【図3】 変形例の接合体製造装置20Bの構成の概略を示す構成図である
  - 【図4】 変形例の加熱加圧ローラ30Cの外観を例示する外観図である。 【符号の説明】
- 10 固体高分子膜、12,12A,12B 触媒担持フィルム、14,14 B 接合部材、16,16A,16B フィルム、18,18B 接合体、20,20B 接合体製造装置、22 巻き出しローラ、24 張力除去ローラ、25 予備加熱ヒータ、26,26A,26B 巻き出しローラ、28,28A,28B 保冷ローラ、29 冷却装置、30,30B,30C 加熱加圧ローラ、30a 転写部、31 ヒータ、32 加圧装置、34 冷却ローラ、35 冷却装置、36,36A,36B 剥離ローラ、38,38A,38B 剥離角度設定ローラ、40,40A,40B 巻き取りローラ、42,42B 巻き取りローラ。

【書類名】 図面

【図1】

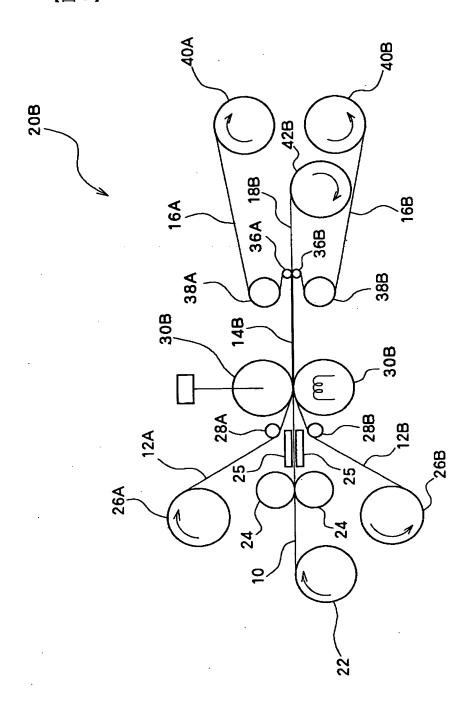


【図2】





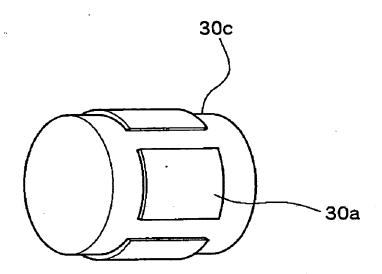
【図3】







## 【図4】





【書類名】

要約書

【要約】

【課題】 固体高分子膜と触媒との良好な接合体を製造する。

【解決手段】 固体高分子膜10を加熱加圧ローラ30の一方のローラに接触させて予備加熱した後に触媒担持フィルム12と共に加熱加圧ローラ30でホットプレスする。予備加熱により固体高分子膜10は軟化した状態でホットプレスされるから、固体高分子膜10と触媒との結着強度は大きくなり、剥離ローラ36によってフィルム16が剥離される際に触媒が固体高分子膜10から剥離するのを防止することができる。また、ホットプレスの前に触媒担持フィルム12を保冷ローラ28により保冷すると共に加熱加圧ローラ30の触媒担持フィルム12 側の温度を固体高分子膜10側より若干低くする。これによりフィルム16と触媒との結着強度が増加するのを抑制してフィルム16の剥離性を向上させることができる。

【選択図】

図 1

#### 出願人履歴情報

識別番号

[000003207]

1. 変更年月日

1990年 8月27日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県豊田市トヨタ町1番地

氏 名

トヨタ自動車株式会社